



TITLE:

Experimental study on fracture characteristics of graphene for development of transparent electrode(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Jang, Bongkyun

CITATION:

Jang, Bongkyun. Experimental study on fracture characteristics of graphene for development of transparent electrode. 京都大学, 2017, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2017-09-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k20700>

RIGHT:

許諾条件により本文は2018-09-24に公開

京都大学	博士（工学）	氏名	蔣捧鈞
論文題目	Experimental study on fracture characteristics of graphene for development of transparent electrode（透明電極開発を目的としたグラフェンの破壊特性に関する実験的研究）		
（論文内容の要旨）			
<p>炭素原子1層あるいは数層からなるグラフェンは、電氣的、熱的、光学のおよび機械的に優れた特性を有することが知られており、フレキシブル電子素子、グラフェン複合材料および高信頼性電子素子など、多岐にわたる産業応用が期待されている。産業応用のためには、グラフェンの変形および破壊特性を正確に把握しておく必要があるが、膜厚が1ナノメートル以下であるグラフェンに対する力学試験の困難から、その特定に関する実験研究は進んでいない。また、近年では、フレキシブル透明電極に用いるグラフェンの大量生産が計画されている。大量生産を行う際の「ロール・ツー・ロール工程」において、ロール圧力に起因してグラフェンが損傷する事例が指摘されており、その解決が早急に求められている。本論文は、グラフェンに対する力学実験手法を開発してその破壊特性を明らかにするとともに、ロール・ツー・ロール工程におけるグラフェンの損傷を防ぐための力学的な検討を実施した結果をまとめたものであり、5章からなっている。</p> <p>第1章は、緒論であり、研究の背景および本論文の目的を述べている。グラフェンは、電気電導性、光学的透過性および機械特性が優れていることから、次世代高信頼性フレキシブル透明電極として注目されていること、および、その実現のためには正確な変形および破壊特性を取得することが必要であることを説明している。過去の研究に関するレビューを行い、実験的にグラフェンの力学特性を得る従来手法として、穴を有する基板上に転写されたグラフェンに圧子を用いて負荷を与え、逆解析的に応力-ひずみ関係を得るナノインデンテーション試験を紹介している。このとき、ナノインデンテーション法の短所（破壊実験の困難さおよび力学場の不正確さ）を指摘している。また、従来の実験研究は、人工的に合成され欠陥の多い多結晶グラフェンを用いたものが大半であることを指摘し、欠陥の少ない単結晶グラフェンについては、試験手法が確立されておらず、正確な破壊じん性が特定されていないこと述べている。さらに、透明電極として用いるグラフェンを大量生産する行程を説明し、特定の行程中でグラフェンに損傷が生じる問題点を指摘している。以上のように、グラフェンの破壊特性に関する実験研究およびその力学的検討が進んでいない現状を示した上で、実際の生産工程における問題点についても言及し、本研究の目的を明確にしている。</p> <p>第2章は、グラフェンに対する引張破壊試験手法の開発を目的として、まず、欠陥の少ない単結晶グラフェンの取得手法について述べている。機械的なはく離を行うことでグラフィイトから単結晶グラフェンを取得し、シリコン製のデ</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	蔣捧鈞
<p> バイス上に転写を行うことで、0n-chip 状の試験片を作製している。シリコン製のデバイスは、その側面に対して負荷圧子を用いて圧力を与えることで、デバイス上の試験体への引張負荷を実現できる。グラフェンは極めて薄いため、試験片を作製する際に破損する確率が極めて高いが、グラフェン転写時のシリコン製デバイスの表面エネルギーの制御および保護膜エッチング工程における溶液の表面張力制御等の工夫を行うことで、試験片の作製成功率を高めることに成功している。また、正確な破壊力学実験を行うためには、転写されるデバイスの引張軸とグラフェン試験片の負荷軸とのアライメント調整が重要である。専用の転写装置を開発し、負荷システムの精密なアライメント調整に成功している。また、破壊じん性取得のためには、グラフェンに対して予き裂を導入する必要がある。損傷が少なく精度よく加工できる条件を特定した集束イオンビーム加工を用い、グラフェンへの予き裂の導入を行っている。作製した試験片を走査電子顕微鏡内に設置し、その場観察環境下で引張負荷試験を行い、予き裂を起点としてグラフェンが破壊に至るまでの微小な荷重と変位の変化を高精度で取得することに成功している。実験で得られた結果に対して有限要素法解析を実施し、破壊じん性を取得している。開発した試験手法は、グラフェンの破壊特性を得る用途において有用である。 </p> <p> 第3章は、第2章で開発した試験手法を用いて、単結晶グラフェンが重なった多層グラフェン試験体に対して破壊試験を実施している。実験から得られた破壊じん性値は、単層グラフェンのそれより大きいことを示している。その場観察像によって、き裂がグラフェンの各層ごとに異なる経路を辿り、順次的に進展する時間的な非同期現象を引き起こすことを明らかにしている。その場観察結果をもとに、多層グラフェン特有のき裂進展メカニズムについて検討を行い、単層グラフェンに比べて高い破壊じん性の原因は、多層グラフェン内での層間すべりに起因したエネルギー解散によるものと結論付けている。多層グラフェンの破壊挙動および高い破壊じん性を示すメカニズムはこれまで未解明であり、それらを明らかにしたことに本研究の特徴がある。 </p> <p> 第4章は、グラフェン透明電極生産時におけるロール・ツー・ロール方式による転写工程において、グラフェンをポリマーフィルム上に転写する際の力学的な原因によるグラフェンの破壊を防ぐ方法について検討を行っている。走査型電子顕微鏡を用いて破壊の様子を直接観察し、その破壊モードを明らかにしている。有限要素法解析を用いて、銅薄膜上に合成されたグラフェンの表面粗さに起因した破壊メカニズムを特定し、ロール圧力と工程パラメータを調整することで、転写されるグラフェンの損傷を低減できることを確認している。大面積をもつ高品質グラフェン透明電極製造の大量生産に貢献する成果を得たことが本研究の特徴である。 </p> <p> 第5章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。 </p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、次世代フレキシブル電子デバイスのコア材料として期待されているグラフェンに着目し、引張負荷試験手法の開発とともにその破壊特性を解明した成果についてまとめたものである。また、グラフェンを用いた高品質の透明電極を大量生産するための工程を開発したものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 機械的なはく離を行うことで、グラファイトから極めて欠陥の少ないグラフェンを取得し、短冊状のグラフェンを負荷用微小フレームに転写によって取り付け、走査型電子顕微鏡によるその場観察下での引張破壊試験に成功している。高精度で取得したグラフェンに加わる微小な荷重と変位を基に、有限要素法解析を援用し、グラフェンの変形特性および破壊特性を求めている。試料作製やハンドリングの難しさに起因して、これまで困難とされてきたグラフェンの引張破壊試験に成功したことに本研究の特徴がある。

2. 産業界からの注目度が高い多層グラフェンを対象とし、本論文で開発した試験手法を用いてその破壊特性を明らかにしている。グラフェン内に微小な切り欠きを導入して破壊実験を行い、その破壊じん性を求めるとともに、多層グラフェンが示す特有のき裂伝ぱ挙動をその場観察することに成功している。多層グラフェンでは、隣接する層の間で経路が独立したき裂進展、および、時間的なき裂進展の非同期現象を生じる場合があることを発見し、単層のグラフェンに比べて高い破壊じん性を有することを示している。これまで未解明であった多層グラフェンの特異な破壊挙動と破壊強度を明らかにしたことに本研究の特徴がある。

3. グラフェンを用いた透明電極を大量生産する際、グラフェンの破壊に起因した品質低下を防ぐ方法を開発している。生産工程において、ロール・ツー・ロール方式を用いてグラフェンをポリマーフィルムに転写する際、その圧力によってグラフェンは破壊を生じやすい。そのときの破壊のモードを走査型電子顕微鏡観察により明らかにし、有限要素法を用いて表面粗さに起因した破壊メカニズムを解明している。得られた結果をもとに工程パラメータを調整することで、大面積且つ高品質のグラフェン透明電極が製造できることを示している。透明電極生産時の転写工程に着目し、品質改善について力学的観点から議論していることに本研究の特徴がある。得られた成果は、産業界に対して重要な知見を与えるものである。

本論文は、グラフェンに対する引張負荷試験手法を開発し、特に多層グラフェンの破壊特性を実験と力学解析によって解明したものである。さらに、グラフェン透明電極の高品質化のための検討も行っており、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成29年7月31日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公開可能日： 年 月 日以降